

# 長寿命核分裂生成物ヨウ素<sup>129</sup>の高速炉用核変換ターゲットに関する研究

著者	舘 義昭
号	55
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第4379号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/62063">http://hdl.handle.net/10097/62063</a>

氏 名	たち よしあき
授 与 学 位	館 義 昭
学位授与年月日	博士（工学）
学位授与の根拠法規	平成22年9月8日
研究科、専攻の名称	学位規則第4条第1項
学 位 論 文 題 目	東北大学大学院工学研究科（博士課程）量子エネルギー工学専攻
指 導 教 員	長寿命核分裂生成物ヨウ素 129 の高速炉用核変換ターゲットに関する研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 若林 利男
	主査 東北大学教授 若林 利男 東北大学教授 長谷川 晃
	東北大学教授 三村 均 東北大学准教授 岩崎 智彦
	東北大学准教授 高橋 信

## 論文内容要旨

埋蔵資源に乏しい日本において、高い経済発展と国民生活の持続のためには、持続可能な原子力発電による基幹電源の確保が必要不可欠となっている。このため、商用原子炉の使用済燃料から再処理によってウランを回収し、再利用する核燃料サイクルの構築が進められているとともに、使用済燃料から回収されるプルトニウムを利用したウラン－プルトニウム混合酸化物燃料（MOX 燃料）を商用軽水炉で利用し、ウラン資源の節減、有効利用を図るプルサーマル計画が進められている。さらに、高速中性子を利用して発電とともに新たなプルトニウム燃料を製造できる高速炉の開発が進められており、現在の軽水炉を中心とした核燃料サイクルを、将来、高速炉を中心とした核燃料サイクルに発展させ、半永久的な国産エネルギーの確保に向けた研究開発が進められている。このように、日本の高い経済・産業レベルと国民生活レベルを考えると、効率的なエネルギー源としての原子力発電システムはすでに不可欠なものとなっている。一方、原子力エネルギーの利用には発電に伴って生じる放射性廃棄物の処分の問題が伴っている。原子力エネルギーの効果的な活用のためには、放射性廃棄物の処理・処分にに関する技術の確立が急務となっている。現在の日本の政策では、このような原子力発電にともなって発生する放射性廃棄物は、適切な処理の後に地中に埋設処分する、地層処分の方式が取られ、様々な研究開発、技術開発が進められている。近年、高速炉を中心とした核燃料サイクルにおいて、これら放射性廃棄物に分類されているもののなかでも、特に、潜在的毒性の高い MA や発熱性がある FP、超長期に亘って微弱な放射線を放出しつづける LLFP などに対して、使用済燃料の再処理の過程で分離回収し、燃料中への添加や専用ターゲットの製造によって高速炉に再装荷し、それらを半減期の短い元素や安定な元素へ変換できることが明らかにされてきている。使用済燃料の中に含まれ、その半減期が 1570 万年と著しく長い放射性ヨウ素（I-129）については、その高い水溶性により地下水を通じた移動性が高く、地層処分後の被ばく線量の支配的核種となっている。日本の地層処分技術においては、計算評価条件による最大値の変動はあるものの、線量が最も高い結果においても諸外国で提案されている線量基準を十分に下回っているが、I-129 を回収して高速炉で核変換することによって、その被ばく線量をさらに 1/10 以下に低減することができ、長期間にわたる放射性廃棄物処分の安全性をより一層高めることができる。

本研究では高速炉を利用した I-129 の核変換技術を確立に資するため、特に、高速炉の炉内への装荷

要素（ターゲット）に着眼して、使用環境に適合するヨウ素化合物に対して高温での安定性と被覆管材料と長期間に亘る共存性を実験的に評価し、最適なヨウ素化合物を選定する。また、より高い核変換率を実現するためのターゲット形態を検討し、試作試験を通じてその製造性を明らかにする。これらを通じて、実現性が高く高核変換率を達成する I-129 の高速炉用核変換ターゲットを開発することを目的とする。

I-129 はヨウ素の同位体であり、融点が  $113.8^{\circ}\text{C}$ 、沸点が  $184.3^{\circ}\text{C}$  のハロゲン元素である。このため、高速炉の炉内温度に対して単体では気化してしまう。高速炉の炉内で効率的な核変換を行うためには、できるだけ I-129 の原子数密度を高めて装荷する必要があり、炉内温度において固相状態の I-129 の装荷が必要となる。また、炉内装荷では核燃料と同様、被覆管内にターゲットを装填してピンとし、これを複数本束ねて集合体を形成して炉内へ装荷することになる。そのため、ターゲットとするヨウ素化合物においては被覆管材料と良好な共存性を有することが必要となる。さらに、1 回の炉内装荷で全量の I-129 の核変換は困難であるため、未変換の I-129 を回収して新たな核変換要素に製造する、リサイクルが必要となる。I-129 のリサイクルを考慮して、ヨウ素化合物の長期保管に対する耐性や装荷ターゲットへの製造性についても適合化合物の選定の際に重要な項目となる。

このような、高速炉用の I-129 の核変換ターゲットとしての適合性のある化合物形態を明らかにするため、すべての二元系ヨウ素化合物に対して、(1)相手元素の選定、(2)核的特性、(3)融点、(4)被覆管材料との反応性、(5)製造性、及び(6)リサイクル性の観点から、主に文献データを中心に順次、調査して適合化合物として  $\text{MgI}_2$ 、 $\text{KI}$ 、 $\text{NiI}_2$ 、 $\text{CuI}$ 、 $\text{RbI}$ 、 $\text{YI}_3$ 、 $\text{BaI}_2$  の 7 種類を選定した。

I-129 の高速炉用核変換ターゲットとして有望な化合物として選出した 7 種類のヨウ素化合物に対して、より詳細な適用性を検討するために、市販の高純度粉末試料を利用して、高温特性、被覆管材料との共存性、熱的特性を実験的に評価した。その結果、 $\text{KI}$  は市販の粉末試料の入手ができなかったため、将来の産業規模化への展開に課題が生じる可能性があり対象から外した。また、 $\text{NiI}_2$  については  $300^{\circ}\text{C}$  付近で著しい分解が生じて蒸発が生じるために対象から除外した。これらを除く 5 種類のヨウ素化合物では、高温特性評価の結果からは  $\text{BaI}_2$ 、 $\text{RbI}$  が優れていることが明らかとなった。 $\text{CuI}$ 、 $\text{YI}_3$  ではそれぞれの融点以下の温度から、使用状態によっては分解、蒸発が生じる可能性のあることが判明した。一方、被覆管材料との共存性評価からは、 $\text{MgI}_2$ 、 $\text{YI}_3$  では孔食が、 $\text{CuI}$  では被覆管材料との間で反応が生じることが明らかになった。また、 $\text{RbI}$  や  $\text{YI}_3$  では、固相同士の接触部位よりも、気相と接触している部位の方が被覆管材料の劣化が著しくなる挙動が明らかになり、高温特性評価における TG-DTA 結果のように高温で気相化したヨウ素化合物成分による被覆管劣化が発生する場合があることが明らかになった。さらに、 $\text{BaI}_2$  のように水分が残留する状態では、被覆管材料の酸化が著しく起こることが明らかとなったが、残留水分を除去することにより、この酸化挙動は抑制可能であり、水分除去の状態では  $\text{BaI}_2$  が最も被覆管材料との共存性に優れている。これらの結果から、7 種類のヨウ素化合物の中では、 $\text{BaI}_2$  が最も高速炉用核変換ターゲットに適するヨウ素化合物であると言える。ヨウ素化合物の熱伝導性は、代表的な高速炉炉心材料であるステンレス鋼や一般的なセラミックス材料と比較しても非常に小さい。特に、核変換用ターゲットとして有望な候補材である  $\text{BaI}_2$  においても、その熱伝導性は室温から高温に亘って非常に低い。



高速炉による I-129 の核変換の実現に向けて、 $BaI_2$  の化合物形態を対象とした核変換性能の高いターゲット形態について設計・検討を行い、その性能を評価した。また、高核変換性能を有するターゲットの製造法についても検討し、試作や基礎的データの取得を通じて、製造性が高く実現性のある I-129 の高核変換ターゲットについて検討した。

高速炉内での核変換効率を向上するためには、高速炉炉内への装荷形態として最も有望である  $BaI_2$  を用いて、高速中性子の減速材である水素化ジルコニウム ( $ZrH_{2-x}$ ) との混合複合化することが有効である。これらの  $BaI_2$ 、 $ZrH_{2-x}$  の材料学的な特性を基に図 1 に示すような形態が考えられるが、特に製造性における難易を中心に混合複合化の方法を検討した結果、混合粉末をペレット状に焼結した複合体が有望となることを明らかにした。

このような  $BaI_2$  と  $ZrH_{2-x}$  の混合複合体からなるターゲットの核変換率を解析コードを用いて評価した結果、 $BaI_2$  と  $ZrH_{2-x}$  を 10 : 90 (vol%) で均質に混合したターゲットでは、1.0 以上のサポートファクタで、約 7%/年の核変換率を達成できることが明らかとなった。これは、先行研究で示されていた核変換率の約 2 倍に相当し、大きな向上が図れることを確認した。 $BaI_2$  と  $ZrH_{2-x}$  の混合粉末からなる複合体の製造性については、混合粉末の加熱により焼結体を製作しようとする場合、 $BaI_2$  と  $ZrH_{2-x}$  の混合比が重要となり、核変換性能を高める低  $BaI_2$ -高  $ZrH_{2-x}$  では混合粉末の焼結が出来ないことが判明した。これを改善するためには、焼結性のある  $BaI_2$  の含有比を高めると同時に粒径を考慮した粒子数の調整が重要である。粒子数で調整した  $BaI_2$ - $ZrH_{2-x}$  混合比によって図 2 に示すように混合粉末の堅固な焼結体の製作が可能となった。一方、低  $BaI_2$ -高  $ZrH_{2-x}$  組成の混合粉末を圧粉充填体として装荷する方法についても検討し、充填容器の製造性や粉末の充填方法に見通しが得られたが、粉末の充填率の低さが課題であることが明らかとなった。また、 $BaI_2$ - $ZrH_{2-x}$  の混合複合体の熱特性について、熱伝導率が著しく低いことを明らかとした。これは焼結体の構造が原因となっているものと推測された。

これらの製造性と熱的特性を考慮して、複合化による核変換率の向上を目指した、高速炉用 I-129 の核変換ターゲットとして図 3 に示す改良バルク分散混合ターゲットを考案した。 $ZrH_{2-x}$  母材に微細孔を設け、そこに焼結による緻密化が可能な  $BaI_2$ - $ZrH_{2-x}$  混合粉末を充填したこの改良バルク分散混合では、ターゲット全体では低  $BaI_2$ -高  $ZrH_{2-x}$  組成となっているため、図 4 に示すように高い核変換率を有していることが解析により確認された。また、その製造性についてもこれまでに検討してきた方法が適用できると考えられる。さらに、炉内装荷による熱的、強度的特性における課題は無く、I-129 核変換ターゲ

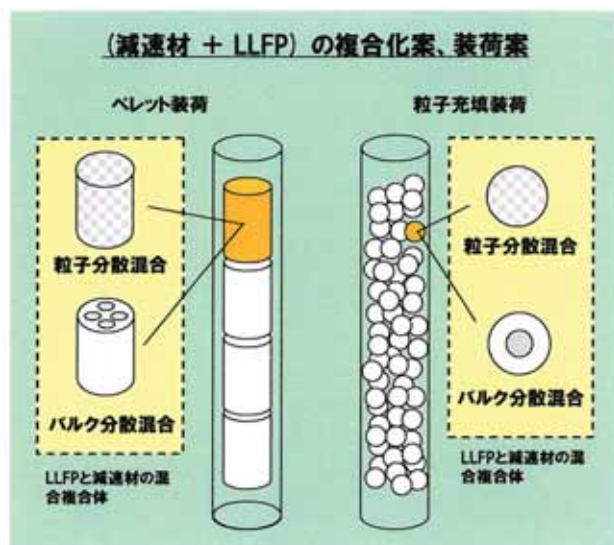


図 1 混合複合体の炉内装荷形態案



図 2 粒子数調整により焼結した  $BaI_2$ - $ZrH_2$  混合複合体

ットとして炉内に安定に装荷できる見通しである。

以上のように、高速炉での I-129 の核変換ターゲットとして、核変換率が高く、製造性の高い核変換ターゲットとして、改良バルク分散混合ターゲットが最も優れていることを明らかにした。

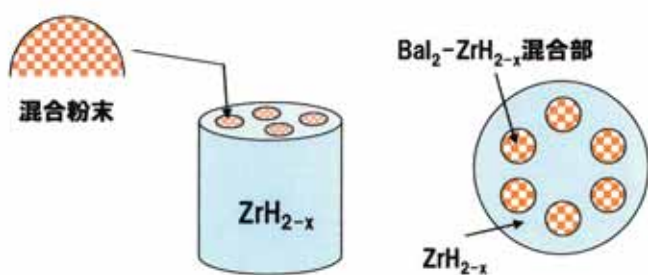


図3 改良バルク分散混合ターゲット

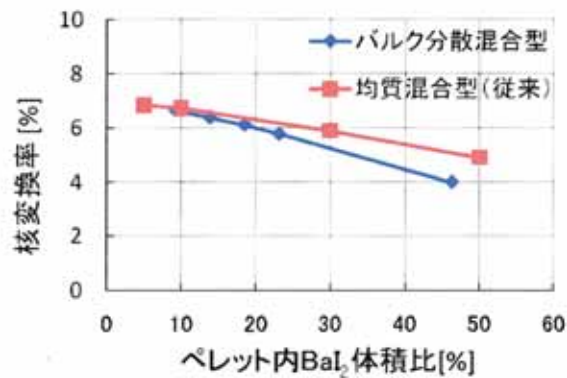


図4 改良バルク分散混合ターゲットの核変換率



# 論文審査結果の要旨

原子力発電所から取出される使用済燃料の中に含まれ、その半減期が 1570 万年と著しく長い放射性ヨウ素 (I-129) は、その高い水溶性により地下水を通じた移動性が高く、地層処分後の被ばく線量の支配的核種となっている。日本の地層処分技術においては、計算評価条件による最大値の変動はあるものの、線量が最も高い結果においても諸外国で提案されている線量基準を十分に下回っている。しかし、I-129 を回収して高速炉で核変換することによって、その被ばく線量をさらに 1/10 以下に低減することができ、長期間にわたる放射性廃棄物処分の安全性をより高めることが期待できる。

本論文は、高速炉を利用した I-129 の核変換技術の確立に資するため、特に、高速炉の炉内への装荷要素（ターゲット）に着眼して、使用環境に適合するヨウ素化合物に対して高温での安定性と被覆管材料と長期間に亘る共存性を実験的に評価し、最適なヨウ素化合物を選定する。また、より高い核変換率を実現するためのターゲット形態を検討し、試作試験を通じてその製造性を明らかにする。これらを通じて、実現性が高く、高核変換率を達成する I-129 の高速炉用核変換ターゲットを開発することを目的としている。

本論文は、その成果をまとめたものであり、全文 6 章より構成される。

第 1 章は序論であり、本研究の背景、先行研究、目的について述べている。

第 2 章では、高速炉を利用した I-129 の核変換システムの概要と技術的課題について述べている。

第 3 章では、高速炉環境に適する I-129 の最適な装荷形態候補の調査・検討結果について述べている。

2 元系のヨウ素化合物を対象に、核変換ターゲットとして重要な核的特性、融点、被覆材との反応性、製造性、リサイクル性における適性について、文献等の情報に基づいたスクリーニングを行っている。この結果から、高速炉の炉内への装荷が可能なヨウ素化合物候補を選定している。

第 4 章では、第 3 章で選定したヨウ素化合物に対して、高温での安定性、粉末の焼結性、被覆管材料との共存性、熱的特性の基礎的特性について述べている。安定同位体の I-127 からなる材料を用いて、それぞれの評価試験を行い、第 3 章でのスクリーニングで選定したヨウ素化合物の諸特性を実験的に明らかにしている。これらの試験結果に基づき、高速炉での核変換ターゲットとして最適な化合物形態として  $\text{BaI}_2$  を選定している。

第 5 章では、高速炉での I-129 の核変換における効率の改善・向上を目指して、高核変換ターゲットの具体的な仕様を検討し、その製造性、熱的特性等を実験的に評価している。高速炉用 I-129 の核変換ターゲットとして改良バルク分散混合ターゲットを考案している。 $\text{ZrH}_{2-x}$  母材に微細孔を設け、そこに焼結による緻密化が可能な  $\text{BaI}_2\text{-ZrH}_{2-x}$  混合粉末を充填したバルク分散混合では、高い核変換率（約 7%）を有することを明らかにした。また、高核変換ターゲットの製造性については、試作試験を通して十分に製造できる見通しを示し、さらに、炉内装荷における熱的、強度的特性についても問題ないことを明らかにした。

第 6 章は、結論である。

本論文は、これまで放射性廃棄物の中でその取扱いが課題とされていた長寿命核分裂生成物 I-129 に対して、高核変換率を達成し、製造性が優れた高速炉用核変換ターゲットを開発したもので、放射性廃棄物による環境負荷を低減し、持続可能な原子力エネルギーシステムの構築に貢献することが期待できるとともに、原子力工学分野の発展に大いに寄与するものである。

よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として合格と認める。